

Vol. 18. No. 3. 1970

1970 3

2

KFKI

KÖZLEMÉNYEK

СООБЩЕНИЯ ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ
REPORTS OF THE CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS

Szerkeszti: Ádám András

Редактор: А.Адам

Editor: A. Ádám

MTA KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZET KÖNYVTÁR- ÉS KIADÓI OSZTÁLYA

БИБЛИОТЕКА И ИЗДАТЕЛЬСКИЙ ОТДЕЛ

ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ ВЕНГЕРСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES

CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS LIBRARY AND DOCUMENTATION DEPARTMENT

BUDAPEST, 114. POB 49.

Technikai szerkesztő: Nagy Imréné
Megjelent: 1970. jun. 5.

Példányszám: 320
Rotaszám: 5005

A kiadásért felelős: Pál Lénárd igazgató

Megjelenik: kéthavonta

Előfizethető a 227-90173-1448 MNB bevételi számlán

Előfizetési díj: egyes szám 5,-R, egy évre: 30,-R /6 szám/

Vol. 18. No. 3. 1970.

TARTALOM

Oldal

1. Németh Géza: Szférikus Bessel-függvények gyökeinek
Csebisev-sorfejtése 85
2. Salamon Tamás: A Boson téroperatorok un. differenciál-
operátor reprezentációja és ennek a
normálrendezéssel való kapcsolata 99
3. Kósa Somogyi István, Dézsi István és Balog János:
Dimetil-anilinben oldott FeCl_3
Mössbauer-spektrumának vizsgálata
gamma-besugárzás után 109
4. Nagy G. Ágnes: Szubmikrokoncentrációju jodát-oldatok
radiolitikus redukciója savanyu és
lugos közegben 115

Р Е З Ю М Е

1. Разложения корней сферических функций Бесселя

Г. Нэмет

В работе определяются многочисленные приближения корней сферических функций (и их производных) Бесселя при помощи частичных сумм сходящихся рядов по полиномам Чебышева. Коэффициенты рядов приводятся в таблицах в случае $m = 1$ и в случаях $m = 2(1)10$ до точности 18 и 10 десятичных цифр.

2. "Дифференциально-операторное" представление бозонных операторов поля и его связь с нормальным упорядочением

Т. Шаламон

С помощью когерентных состояний рассматривается одно из интересных представлений бозонных операторов поля, т.е. представление в виде дифференциальных операторов. Показывается связь этого представления с получением операторных функций в нормально упорядоченном виде и выводится новая, совсем общая формула нормального упорядочения. В качестве примера определяются нормальные виды двух когерентных операторных функций.

3. Исследования мессбауэровских спектров FeCl_3 , растворенного в диметилловом анилине

И. Коша Шомоди, И. Дежи, Я. Балог

Измеренный при температуре облучения мессбауэровский спектр системы DMA- FeCl_3 , поглотившей гамма-дозу источника ^{60}Co в 50 Мрад при температуре 77°K обнаруживает только наличие ионов Fe^{3+} , следовательно выход экситонной редукции — поскольку она совершается — должен быть $g < 0,01$ ион/100 эв. Мессбауэровские спектры и кривые зависимости электрической проводимости от температуры делают вероятным предположение того, что большинство реакций, происходящих в твердой фазе, в области температур от 77 до 150°K вызывают электроны и ионы, освобожденных из мелких ловушек.

4. Радиолитическая редукция растворов йодата при субмикроконцентрациях в присутствии кислой и щелочной среды

А. Надь

Облучались водные растворы йодата при субмикроконцентрациях гамма-лучами источника ^{60}Co в присутствии воздуха. Измерялось относительное количество образовавшегося продукта, йодида, в зависимости от времени облучения, от концентраций кислоты или щелочи в растворе и от качества кислот. Концентрация йодата в растворах составляла $\sim 10^{-12}$ г.мл $^{-1}$, вычислена на основе активности ^{131}I . Растворы были подкислены или подщелочены едким натрием. Сравнивались радиолитические свойства растворов йодата и йодида при субмикро- и макроконцентрациях и рассматривались возможные причины разниц в их поведении.

S u m m a r i e s

1. Computation of Zeros for Spherical Bessel-Functions and their Derivatives

G. Németh

The power series representations of roots for spherical Bessel-functions and their derivatives are discussed. It is shown that the well known series of McMahon is not only asymptotic but convergent at the rate of a geometric progression. It can be easily seen that the convergence of the series becomes slower with increasing order. In some cases one can remove this defect by rearranging the series in terms of Chebyshev polynomials. The coefficients of these Chebyshev series are listed in tabulated form for $m = 1$ to 15, and for $m = 2$ (1) 10 to 10 decimal digit accuracy, respectively.

2. Relation of the Differential Operator Representation of the Boson Field Operators to their Normal Ordering

T. Salamon

Considering the coherent states, an interesting representation of the boson field operators, the so-called differential operator representation, is discussed. It is shown how this representation is related

to the normal ordered forms of the operator functions and a new formula for normal ordering is obtained. For illustration the normal forms of two given operator functions are determined.

3. The Mössbauer Spectrum of FeCl_3 in Dimethyl-Aniline Solution

I. Kósa Somogyi, I. Dézsi and J. Balog

The Mössbauer spectrum of the DMA- FeCl_3 system measured at 77°K after irradiation with a ^{60}Co gamma dose of 50 Mrad shows the exclusive presence of Fe^{3+} ions. Thus, the exciton reduction yield, if this process occurs at all, can be not more than $G < 0,01$ ion/100 eV. In the light of the Mössbauer spectra and the conductivity vs temperature curves the majority of the reactions occurring in the solid phase at temperatures from 77° to 150°K seem to be initiated by electrons and ions escaping from the shallow precipitate.

4. Radiolytic Reduction of Trace Iodate Solutions in Acidic and Alkaline Solutions

Ágnes G. Nagy

Iodate /carrier-free $^{131}\text{IO}_3/$ solutions of trace concentration were irradiated with ^{60}Co gamma-rays in the presence of air. The reduction yield was measured as a function of irradiation time, acid or alkali concentration and the type of residual acid and evaluated in terms of iodide percentage. The concentration of the iodate solutions, estimated from the ^{131}I activity was found to be $10^{-12}\text{g, nk}^{-1}$. The solutions were acidified by hydrochloric or sulphuric acid and alkalized by sodium hydrate. The radiolysis data of trace iodate or iodide solutions were compared with those of macroconcentrations and the possible deviations are discussed.

SZFÉRIKUS BESSEL-FÜGGVÉNYEK GYÖKEINEK CSEBISEV-SORFEJTÉSE

Irta: Németh Géza

Összefoglalás

A dolgozatban a szférikus Bessel-függvények és deriváltjaik gyökeinek meghatározásához Csebisev-sorfejtések segítségével polinomközelítéseket adunk meg. A $\nu = 3/2$ esetben a gyökök sorfejtésének együtthatóit 18 decimális jegyre, a $\nu = 5/2$ (1) $21/2$ esetekben pedig 10 decimális jegyre számítottuk ki.

1. Bevezetés

A szférikus Bessel-függvények

$$j_m(x) = \sqrt{\frac{\pi}{2x}} J_{m+1/2}(x), \quad m = 0, 1, 2, \dots \quad (1)$$

és deriváltjaik $j'_m(x)$ x_n ill. x'_n n -ik gyökeinek meghatározására Csebisev-sorfejtések segítségével polinomközelítéseket határozzunk meg. Számításaink alapjául az a jól ismert sorfejtés szolgál, amelyet McMahon adott meg [1]:

$$x_n \sim \beta - \sum_{k=0}^{\infty} a_k \frac{1}{\beta^{2k+1}}, \quad \beta = \left(n + \frac{m}{2}\right)\pi, \quad (2)$$

$$x'_n \sim \beta' - \sum_{k=0}^{\infty} b_k \frac{1}{\beta'^{2k+1}}, \quad \beta' = \left(n + \frac{m-1}{2}\right)\pi. \quad (3)$$

A (2) és (3) sorokat nagy n -k esetére használják általában. Az első hét a_k és b_k együttható megtalálható [2]-ben.

Mi e helyett az

$$x_n = \beta \sum_{k=0}^{\infty} p_k^{(m)} T_{2k}(s/\beta), \quad s \leq \beta \quad (4)$$

$$x'_n = \beta' \sum_{k=0}^{\infty} q_k^{(m)} T_{2k}(z/\beta') , \quad z \leq \beta' \quad (5)$$

Csebisev-sorfejtéseket határozzuk meg. Itt s és z alkalmasan választott paraméterek pl: $s = \beta_1 = \left(1 + \frac{m}{2}\right)\pi$ választásnál a (4) sor az összes gyököt megadja, mivel $\beta_1 < \beta$, míg $s = \beta_2$ esetén az első gyöktől eltekintve a többi.

Először a (2) sort $m = 1$ esetén vizsgáljuk meg. Ebben a speciális esetben a gyökök azonosak az $x = \operatorname{tg} x$ egyenlet gyökeivel.

Majd az $m > 1$ esetre bizonyítjuk be a sor konvergenciáját. A sorokat Csebisev-polinomok szerint rendezve az $m=1(1)10$ paraméterekre táblázatban adjuk meg a $p_k^{(m)}$ sorfejtési együtthatókat.

Végül a (3) sorra vonatkozólag $m=1(1)10$ esetére a megfelelő sorok $q_k^{(m)}$ együtthatóit adjuk meg táblázatosan.

2. Az $x = \operatorname{tg} x$ egyenlet gyökei

Vezessük be a következő jelöléseket:

$$x_n = \left(n + \frac{1}{2}\right)\pi - \varepsilon = \frac{1}{u} - \varepsilon \quad (6)$$

$$\varepsilon(u) = \sum_{k=0}^{\infty} a_k u^{2k+1} \quad (7)$$

Mivel $x_n = \operatorname{tg} x_n$ azonnal adódik, hogy

$$\operatorname{tg} \varepsilon = \frac{u}{1 - u\varepsilon} \quad (8)$$

Inverzre térve és u szerint differenciálva $\varepsilon(u)$ -ra differenciálegyenletet nyerünk:

$$\varepsilon' = \frac{1}{(1 - u\varepsilon)^2} \quad (9)$$

Ebből további differenciálással nyerhető az

$$(1 - u\varepsilon)\varepsilon'' = 2(\varepsilon + u\varepsilon')\varepsilon' \quad (10)$$

másodrendű egyenlet. A (7) sort ebbe behelyettesítve, az a_k számokra rekurrens képlet adódik:

$$a_{k+1}(k+1)(2k+3) = a_k(2k^2+7k+4) + \sum_{j=1}^{k-1} a_j a_{k-j}(2(k-j)+1)(k+j+2) , \quad k=2,3,\dots \quad (11)$$

Az első öt a_k együttható a következő:

$$\begin{aligned} a_0 &= 1, & a_1 &= 2/3, & a_3 &= 146/105, \\ & & a_2 &= 13/15, & a_4 &= 781/315. \end{aligned}$$

A (8) egyenlet kis átalakítással az

$$\varepsilon \frac{1}{\varepsilon \operatorname{ctg} \varepsilon + \varepsilon^2} = u \quad (12)$$

alakra hozható. Ennek felhasználásával a Lagrange inverz sor segítségével a_k explicit megadható:

$$a_k = \frac{1}{(2k+1)!} \frac{d^{2k}}{d\varepsilon^{2k}} \left[\left\{ \varepsilon \operatorname{ctg} \varepsilon + \varepsilon^2 \right\}^{2k+1} \right] \bigg|_{\varepsilon=0} \quad (13)$$

Most a_k $k \rightarrow \infty$ viselkedését szeretnénk megvizsgálni. Ez a feladat (13) alapján nem látszik egyszerűnek. Ezért most (13)-t a Cauchy integrál-formula segítségével írjuk fel.

$$a_k = \frac{1}{(2k+1)2\pi i} \int_{|\varepsilon|=\delta} \left\{ \operatorname{ctg} \varepsilon + \varepsilon \right\}^{2k+1} d\varepsilon \quad (14)$$

Ebben a képletben az integrálást elvégezhetjük az $|\varepsilon| = \pi/2$ sugarú körön is /célszerűen/. Továbbá alkalmazhatjuk a Laplace módszert az integrál $k \rightarrow \infty$ viselkedésének meghatározására. Az integrál ezért /egy h , $k \rightarrow \infty$ esetén relative exponenciálisan kicsiny mennyiség segítségével/ így írható:

$$a_k = \frac{1}{(2k+1)(\pi i)} \int_{\frac{\pi}{2}(1-i\delta)}^{\frac{\pi}{2}(1+i\delta)} (\operatorname{ctg} \varepsilon + \varepsilon)^{2k+1} d\varepsilon + h, \quad \delta > 0 \quad (15)$$

Ebből pedig könnyen adódik, hogy

$$a_k = \frac{\pi^{1/3} \Gamma(1/3)}{3^{2/3} 4^{1/3}} \frac{1}{k^{4/3}} \left(\frac{\pi}{2} \right)^{2k} \left\{ 1 + O(k^{-1/3}) \right\}, \quad k \rightarrow \infty \quad (16)$$

Ezt a képletet felhasználhatjuk a (7) sor konvergenciájának bizonyítására.

A (16) aszimptotika alapján az

$$u^{2k} a_k = O\left(\frac{1}{k^{4/3} 9^k} \right), \quad k \rightarrow \infty \quad (17)$$

nagyságrendi becslés érvényes az első gyöknél. A többiekénél a konvergencia természetesen még gyorsabb.

Az a_k számokkal képezett sort átírtuk a (4)-nek megfelelő Csebi-sev-sorba és ez új sor együtthatóit a cikk végén táblázatosan 18 decimális jegyre adjuk meg.

3. A szférikus Bessel-függvény gyökei

Rátérve az általános esetre vizsgáljuk meg most $j_m(x)$ trigonometrikus előállítását:

$$j_m(x) = \frac{1}{x} \left\{ P_m(x) \cos \left(x - \frac{2m+1}{4} \pi \right) - Q_m(x) \sin \left(x - \frac{2m+1}{4} \pi \right) \right\} \quad (18)$$

ahol P_m és Q_m polinomok:

$$\begin{aligned} P_0 &= 1, & Q_0 &= 0, \\ P_1 &= 1, & Q_1 &= 1/x, \\ P_2 &= 1 - 3/x^2, & Q_2 &= 3/x, \\ P_3 &= 1 - 15/x^2, & Q_3 &= 6/x - 15/x^3, \quad \text{stb.} \end{aligned}$$

Legyen $x_n = \left(n + \frac{m}{2} \right) \pi - \frac{1}{u} - \epsilon$ és

$$\epsilon(u) = \sum_{k=0}^{\infty} a_k u^{2k+1} \quad (19)$$

A (18) előállításból következik, hogy

$$\operatorname{tg} \left(x_n - \frac{2m+1}{4} \pi \right) = \frac{P_m(x_n)}{Q_m(x_n)} \quad (20)$$

vagy

$$\operatorname{tge} = \frac{Q_m}{P_m} \bigg|_{1/u-\epsilon} \quad (21)$$

Inverzre térve és u szerint differenciálva kapjuk:

$$\epsilon' = - \left(\frac{1}{u^2} + \epsilon' \right) \frac{P_m Q'_m - P'_m Q_m}{P_m^2 + Q_m^2} \quad (22)$$

Használjuk fel a P_m és Q_m polinomokra érvényes

$$P'_m Q_m - Q'_m P_m = P_m^2 + Q_m^2 - 1 = F_m - 1 \quad (23)$$

relációt. Ekkor ϵ -ra differenciálegyenletet nyerünk:

$$\epsilon' = \frac{1}{u^2} (F_m - 1) \quad (24)$$

Az F_m polinom szinbolikus hipergeometriai jelöléssel a következő:

$$F_m = {}_3F_0 \left(\frac{1}{2}, -m, m+1; -1/x^2 \right), \quad x = \frac{1}{u} - \epsilon \quad (25)$$

A (24) egyenlet felhasználható az a_k együtthatók rekurziós képletének meghatározására. A (19) sort (24)-be behelyettesítve az alábbi képletek adódnak:

$$(2k+1) a_k = f_{k+1} + \sum_{j=0}^{k-1} d_{k-j}^{(2j+2)} f_{j+1}, \quad k = 1, 2, \dots \quad (26)$$

$$d_{n+1}^{(2j)} = 2j a_n + \sum_{\ell=1}^n d_{\ell}^{(2j)} a_{n-\ell} \left\{ 2j - \frac{2j-1}{n+1} \ell \right\}, \quad n = 1, 2, \dots$$

ahol

$$d_1^{(2j)} = 2j a_0, \dots, f_j = (-1)^j \frac{(1/2)_j (-m)_j (m+1)_j}{j!}.$$

Az első három együttható a következő:

$$\begin{aligned} a_0 &= f_1, & 3a_1 &= f_2 + 2a_0 f_1, \\ 5a_2 &= f_3 + 4a_1 f_2 + 2a_1 f_1. \end{aligned}$$

A továbbiakban a_k $k \rightarrow \infty$ aszimptotikus viselkedésével foglalkozunk. Láttuk az $m=1$ eset tárgyalásánál, hogy létezik a

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \left| a_k^{(1)} \right|^{\frac{1}{2k}}$$

határérték és egyenlő $\pi/2$ -el. Ennek a limesznek segítségével a konvergencia kérdés eldönthető volt. Jelen esetben nem törekszünk a pontos aszimptotika meghatározására. Csak a

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \left| a_k^{(m)} \right|^{\frac{1}{2k}} = \mu_m \quad (27)$$

számok becslésével foglalkozunk.

Először ehhez az a_k számok integrál előállítását készítjük el. A reziduum tétel alapján

$$a_k = \frac{1}{(2k+1)2\pi i} \int_{|u|=\delta} \frac{\varepsilon(u)}{u^{2k+1}} du \quad (28)$$

Itt δ egy elég kicsi szám, amelyre ε' sora konvergál.

Legyen $\eta = \frac{1}{u} - \varepsilon$, ekkor $\eta' + \frac{1}{u^2} = -\varepsilon'$, ezért

$$a_k = - \frac{1}{(2k+1)(2\pi i)} \int_{|u|=\delta} \frac{\eta'}{u^{2k+1}} du \quad (29)$$

Másrésről viszont a (24) differenciálegyenlet η -ban implicit megoldható:

$$-\frac{\eta'}{F_m(\eta)} = \frac{1}{u^2},$$

$$\eta + \int_{\eta}^{\infty} \left[1 - \frac{1}{F_m(s)} \right] ds = \frac{1}{u} \quad (30)$$

Itt felhasználtuk az $\eta \rightarrow \infty$ $u \rightarrow 0$ határfeltételt. Az implicit kifejezést (29)-be írva kapjuk a_k új integrálelőállítását:

$$a_k = - \frac{1}{(2k+1)(2\pi i)} \int_{|\eta|=\delta}^{-1} \left[\eta + \int_{\eta}^{\infty} \left(1 - \frac{1}{F_m(s)} \right) ds \right]^{2k+1} d\eta \quad (31)$$

Látható az integrandusból, hogy mivel $F_m(s)$ $\frac{1}{s}$ polinomja ezért az $\eta=0$ az integrandus stacionárius pontja. A Laplace módszer alkalmazása könnyen elvégezhető. A μ_m limeszre a következő kifejezés adódik:

$$\mu_m = \int_0^{\infty} \left(1 - \frac{1}{F_m(s)} \right) ds \quad (32)$$

A P_m és Q_m polinomok segítségével ez az integrál kiszámítható

$$\mu_m = \left[-\operatorname{arctg} \frac{Q_m(s)}{P_m(s)} \right]_{s=0}^{s=\infty} \quad (33)$$

A μ_m számok pontos értékének kiszámításához pontosan kellene ismerni a P_m és Q_m polinomok gyökeinek eloszlását. De enélkül is adható μ_m -re egy /céljainknak megfelelő/ becslés. Ez pedig a következő. Könnyen belátható, hogy

P_m , ill. $Q_m \left[\frac{m}{2} \right]$ ill. $\left[\frac{m-1}{2} \right]$ fokú polinomok $\frac{1}{s^2}$ -ben. Tehát P_m -nek és Q_m -nek nem lehet több gyöke mint $\left[\frac{m}{2} \right]$ ill. $\left[\frac{m-1}{2} \right]$. Ekkor azonban μ_m értéke legfeljebb $\pi \left[\frac{m}{2} \right] + \sigma$ ahol $\sigma < \pi$, mivel az arctg legfeljebb π -t tud nőni P_m két gyöke között. Tehát

$$\mu_m \leq \pi \left[\frac{m}{2} \right] + \sigma, \quad \sigma < \pi. \quad (34)$$

Ebből következik, hogy

$$u\mu_m \leq u_1 \mu_m \leq \frac{\pi \left[\frac{m}{2} \right] + \sigma}{\pi \frac{m}{2} + \pi} < 1 \quad (35)$$

Ezzel igazoltuk, hogy érvényes a következő

I. Tétel:

A (2) McMahon sorok a $j_m(x)$ szferikus Bessel-függvény gyökeire minden $m / m = 1, 2, 3, \dots$ és $n / n = 1, 2, 3, \dots$ esetén konvergálnak és a konvergencia geometriai sebességű.

4. A szférikus Bessel-függvények deriváltjának gyökei

A $j'_m(x)$ deriváltfüggvény a Bessel-függvényekre vonatkozó képletek alapján kifejezhető más indexű Bessel-függvényekkel. Így a $j'_m(x) = 0$ egyenlet gyökei azonosak az

$$mj_{m-1}(x) - (m+1)j_{m+1}(x) = 0 \quad (36)$$

egyenlet gyökeivel. Legyen $x_n = \left(n + \frac{m-1}{2}\right)\pi - \epsilon = \frac{1}{u} - \epsilon$. A (36) egyenletbe behelyettesítve a trigonometrikus előállítást

$$\operatorname{tge} = \frac{mQ_{m-1} + (m+1)Q_{m+1}}{mP_{m-1} + (m+1)P_{m+1}} \quad (37)$$

egyenletre jutunk. Legyen

$$\epsilon(u) = \sum_{k=0}^{\infty} b_k u^{2k+1} \quad (38)$$

A (37) egyenletből inverzretérés és u szerinti deriválás után az

$$\epsilon' = - \left[\frac{1}{u^2} + \epsilon' \right] \frac{(mQ'_{m-1} + (m+1)Q'_{m+1})(mP_{m-1} + (m+1)P_{m+1}) - (mQ_{m-1} + (m+1)Q_{m+1})(mP'_{m-1} + (m+1)P'_{m+1})}{(mP_{m-1} + (m+1)P_{m+1})^2 + (mQ_{m-1} + (m+1)Q_{m+1})^2} \quad (39)$$

egyenlet adódik. Külön egyszerűsítjük a számlálót és a nevezőt: a számláló

$$m F_{m-1} + (m+1) F_{m+1} - \frac{m(m+1)(2m+1)}{x^2} F_m$$

a nevező

$$m(1 - F_{m-1}) + (m+1)(1 - F_{m+1}) - \frac{m(m+1)(2m+1)}{x^2} (1 - F_m).$$

Igy a (39) egyenlet rendezés után az

$$\epsilon' = \frac{1}{u^2} \left[\frac{L}{1 - \frac{m(m+1)}{x^2}} - 1 \right], \quad x = \frac{1}{u} - \epsilon. \quad (40)$$

alakú lesz, ahol

$$L = \frac{m}{2m+1} F_{m-1} + \frac{m+1}{2m+1} F_{m+1} - \frac{m(m+1)}{x^2} F_m \quad (41)$$

Az $\epsilon(u)$ függvény b_k együtthatóira a (40) egyenlet segítségével rekurziós képletet nyerhetünk, amely szerkezetileg analóg a (26) képletcsoporthal. Egyetlen különbség csak az, hogy az ott szereplő f_k számok helyett jelenleg az

$$\frac{L(x)}{1 - \frac{m(m+1)}{x^2}} = \sum_{k=0}^{\infty} g_k \frac{1}{x^{2k}} \quad (42)$$

sorfejtés g_k számai használandók. Így pl.: $b_0 = g_1$, $3b_1 = g_2 + 2b_0 g_1, \dots$ stb.

Analóg módon a_k -hoz, vizsgálható b_k $k \rightarrow \infty$ aszimptotikus viselkedése. Levezetés nélkül rögtön b_k integrál előállítását írjuk fel:

$$b_k = - \frac{1}{(2k+1)2\pi i} \int_{|\eta|=\delta^{-1}} \left[\eta + \int_{\eta}^{\infty} \left(1 - \frac{1 - \frac{m(m+1)}{s^2}}{L(s)} \right) ds \right]^{2k+1} d\eta \quad (43)$$

Látható az integrandusból: $\eta = \sqrt{m(m+1)}$ a stacionárius pont. Elvégezve $\bar{\epsilon}$ pont körül a Laplace-módszer szerinti integrálást a

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \left| b_k^{(m)} \right|^{\frac{1}{2k}} = \mu'_m \quad (44)$$

értékre azt kapjuk, hogy

$$\mu'_m = \sqrt{m(m+1)} + \int_{\sqrt{m(m+1)}}^{\infty} \left(1 - \frac{1 - \frac{m(m+1)}{s^2}}{L(s)} \right) ds \quad (45)$$

Ez az integrál P_m és Q_m segítségével kiintegrálható

$$\mu'_m = \sqrt{m(m+1)} - \left[\operatorname{arctg} \frac{mQ_{m-1} + (m+1)Q_{m+1}}{mP_{m-1} + (m+1)P_{m+1}} \right]_{s=\sqrt{m(m+1)}}^{s=\infty} \quad (46)$$

Sajnos μ'_m pontos kiszámítása az arctg-ben szereplő polinomok gyökeinek ismeretében végezhető el.

Az alábbi táblázatban megadjuk az első 30 μ'_m értéket.

m	μ'_m	m	μ'_m
1	2.985009889	16	26.275809105
2	4.475819426	17	27.843136592
3	5.999803150	18	29.410764438
4	7.539330580	19	30.978652924
5	9.087491164	20	32.546769229
6	10.640999477	21	34.115085971
7	12.198075398	22	35.683580106
8	13.757665704	23	37.252232092
9	15.319102815	24	38.821025235
10	16.881941357	25	40.389945182
11	18.445871739	26	41.958979515
12	20.010671437	27	43.528117434
13	21.576176009	28	45.097349495
14	23.142261053	29	46.666667402
15	24.708830552	30	48.236063833

Látható, hogy $u_1 \mu'_m < 1$ ezekben az esetekben. Továbbá, (45) segítségével az is belátható, hogy

$$\lim_{m \rightarrow \infty} \frac{\mu'_m}{\sqrt{m(m+1)}} = 1 + \int_0^1 \frac{1}{u^2} (1 - \sqrt{1-u^2}) du = \frac{\pi}{2} \quad (47)$$

vagyis elég nagy m -re $u_1 \mu'_m < 1$ szintén érvényes. Ezzel bebizonyítottuk, hogy fennáll a következő

II. Tétel:

A (3) McMahon sorok, a $j'_m(x) = 0$ egyenlet, a szferikus Bessel-függvények deriváltjának gyökeit előállító sorok geometriai sebességgel konvergálnak /eltekintve esetleg, véges számú m ($m > 30$) értéktől/.

5. Táblázatok

A $j_m(x) = 0$ és $j'_m(x) = 0$ egyenletek gyökeire vonatkozó McMahon sorokat $m = 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10$ esetén Csebisev-polinom sorba irtuk át, hogy ezáltal is növeljük a konvergenciájának sebességét. Ismeretes ugyanis, hogy ha a hatványsor q kvóciensű geometriai sorként viselkedik, akkor a Csebisev-polinomok szerint rendezett alakja $q_1 = -q(1 + \sqrt{1-q})^{-2}$ kvociensű geometriai sorként viselkedik. Az $m = 2, 3, 4, 5$, ill. $6, 7, 8, 9, 10$ esetekben az első, ill. első kettő gyököt külön adjuk meg, a többi a sorfejtésből számítható. A táblázatbeli számok utolsó helyértéke esetleg 1 egységgel hibás.

$j_2(x_n) = 0$ $x_n = (n+1)\pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k}\left(\frac{2}{n+1}\right),$ $n = 1, 2, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_2(x_n) = 0$ $x_1 = 3.34209366$ $x_n = \left(n+\frac{1}{2}\right)\pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}\left(\frac{5}{2n+1}\right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9595490210	0	0.9650558754
1	-.0413227129	1	-.0358575680
2	-. 9057963	2	-. 9611212
3	-. 356861	3	-. 506989
4	-. 17094	4	-. 32327
5	-. 904	5	-. 2273
6	-. 51	6	-. 170
7	-. 3	7	-. 13
		8	-. 1
$j_3(x_n) = 0$ $x_n = (n+3/2)\pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k}\left(\frac{5}{2n+3}\right)$ $n = 1, 2, 3, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_3(x_n) = 0$ $x_1 = 4.51409965$ $x_n = (n+1)\pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}\left(\frac{3}{n+1}\right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9466960188	0	0.9568660189
1	-.0550201372	1	-.0445162577
2	-. 18218637	2	-. 14751039
3	-. 1135857	3	-. 1005981
4	-. 85251	4	-. 84919
5	-. 7034	5	-. 7921
6	-. 615	6	-. 784
7	-. 56	7	-. 81
8	-. 5	8	-. 9
		9	-. 1
$j_4(x_n) = 0$ $x_n = (n+2)\pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k}\left(\frac{3}{n+2}\right),$ $n = 1, 2, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_4(x_n) = 0$ $x_1 = 5.64670362$ $x_n = (n+3/2)\pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}\left(\frac{7}{2n+3}\right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9369007613	0	0.9495210111
1	-.0656721038	1	-.0523602430
2	-. 27796040	2	-. 20309183
3	-. 2270444	3	-. 1647778
4	-. 225033	4	-. 168206
5	-. 24499	5	-. 19123
6	-. 2823	6	-. 2313
7	-. 338	7	-. 291
8	-. 42	8	-. 38
9	-. 5	9	-. 5
10	-. 1	10	-. 1

$j_5(x_n) = 0$ $x_n = \left(n + \frac{5}{2}\right) \pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k}\left(\frac{7}{2n+5}\right),$ $n = 1, 2, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_5(x_n) = 0$ $x_1 = 6.75645633$ $x_n = (n+2) \pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}\left(\frac{4}{n+2}\right), n=2, 3, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9291954337	0	0.9431023668
1	-.0741942264	1	-.0592860907
2	-. 37155338	2	-. 26040689
3	-. 3645256	3	-. 2405806
4	-. 437197	4	-. 282281
5	-. 57725	5	-. 37142
6	-. 8068	6	-. 5217
7	-. 1171	7	-. 764
8	-. 174	8	-. 115
9	-. 26	9	-. 18
10	-. 4	10	-. 3
11	-. 1		
$j_6(x_n) = 0$ $x_1 = 10.51283541$ $x_n = \left(n+3\right) \pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k}\left(\frac{5}{n+3}\right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_6(x_n) = 0$ $x_1 = 7.85107768, x_2 = 12.27933398$ $x_n = \left(n + \frac{5}{2}\right) \pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}\left(\frac{11}{2n+5}\right), n=3, 4, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9536975383	0	0.9601892515
1	-.0476757740	1	-.0408941447
2	-. 14555248	2	-. 11459659
3	-. 883254	3	-. 672136
4	-. 66172	4	-. 50345
5	-. 5485	5	-. 4259
6	-. 482	6	-. 387
7	-. 44	7	-. 37
8	-. 4	8	-. 4
$j_7(x_n) = 0$ $x_1 = 11.65703219$ $x_n = \left(n + \frac{7}{2}\right) \pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k}\left(\frac{11}{2n+7}\right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_7(x_n) = 0$ $x_1 = 8.93483888, x_2 = 13.47203035$ $x_n = (n+3) \pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}\left(\frac{6}{n+3}\right), n=3, 4, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9484134991	0	0.9555100488
1	-.0533295249	1	-.0458479755
2	-. 18628541	2	-. 14459930
3	-. 1301157	3	-. 953070
4	-. 112684	4	-. 80342
5	-. 10828	5	-. 7670
6	-. 1105	6	-. 788
7	-. 117	7	-. 85
8	-. 13	8	-. 9
9	-. 1	9	-. 1

$j_8(x_n) = 0$ $x_1 = 12.79078171$ $x_n = (n+4) \pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k} \left(\frac{6}{n+4} \right),$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_8(x_n) = 0$ $x_1 = 10.01037075, x_2 = 14.65126281$ $x_n = (n+\frac{7}{2}) \pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k} \left(\frac{13}{2n+7} \right),$ $n = 3, 4, 5, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9437115881	0	0.9512313207
1	-.0584033706	1	-.0504094572
2	-. 22776736	2	-. 17579114
3	-. 1784084	3	-. 1279135
4	-. 173831	4	-. 119099
5	-. 18834	5	-. 12579
6	-. 2171	6	-. 1432
7	-. 260	7	-. 171
8	-. 32	8	-. 21
9	-. 4	9	-. 3
10	-. 1		
$j_9(x_n) = 0$ $x_1 = 13.91582261$ $x_n = (n+\frac{9}{2}) \pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k} \left(\frac{13}{2n+9} \right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_9(x_n) = 0$ $x_1 = 11.07941839, x_2 = 15.81921549$ $x_n = (n+4) \pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k} \left(\frac{7}{n+4} \right),$ $n = 3, 4, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9395048137	0	0.9473158411
1	-.0629788839	1	-.0546114100
2	-. 26935812	2	-. 20768487
3	-. 2321916	3	-. 1645753
4	-. 249605	4	-. 166877
5	-. 29893	5	-. 19212
6	-. 3813	6	-. 2388
7	-. 507	7	-. 312
8	-. 69	8	-. 42
9	-. 10	9	-. 6
10	-. 1	10	-. 1
$j_{10}(x_n) = 0$ $x_1 = 15.03346930$ $x_n = (n+5) \pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_{2k} \left(\frac{7}{n+5} \right)$ $n = 2, 3, \dots$ $k \quad p_k$		$j'_{10}(x_n) = 0$ $x_1 = 12.14320410, x_2 = 16.97754998$ $x_n = (n+\frac{9}{2}) \pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k} \left(\frac{15}{2n+9} \right),$ $n = 3, 4, \dots$ $k \quad q_k$	
0	0.9357206092	0	0.9437259799
1	-.0671251453	1	-.0584882194
2	-. 31062174	2	-. 23990985
3	-. 2905297	3	-. 2048206
4	-. 339571	4	-. 223705
5	-. 44283	5	-. 27754
6	-. 6158	6	-. 3720
7	-. 893	7	-. 525
8	-. 133	8	-. 77
9	-. 20	9	-. 12
10	-. 3	10	-. 2

$j_1(x_n) = 0 \text{ / } x_n = \operatorname{tg} x_n /$ $x_n = \left(n + \frac{1}{2}\right)\pi \sum_{k=0}^{\infty} p_k T_k\left(\frac{3}{2n+1}\right), n=1,2,\dots$		$j'_1(x_n) = 0$ $x_1 = 2.08157597781810062$ $x_n = n\pi \sum_{k=0}^{\infty} q_k T_{2k}(2/n), n=2,3,4,\dots$	
k	p_k	k	q_k
0	0.976950801411416459	0	0.973240154553681625
1	-.023231572190331450	1	-.027262850393595623
2	-. 185195262775156	2	-. 519813078903432
3	-. 2875595341471	3	-. 17492846389689
4	-. 55080634198	4	-. 718980184449
5	-. 1172296304	5	-. 32781735608
6	-. 26590811	6	-. 1593146232
7	-. 629472	7	-. 80849929
8	-. 15365	8	-. 4233625
9	-. 384	9	-. 227018
10	-. 10	10	-. 12402
		11	-. 688
		12	-. 39
		13	-. 2

I r o d a l o m

- [1] McMahon, J.: On the Roots of Bessel and certain related Functions. Ann. of Math. V.9, pp.23-30 /1895/
- [2] Olver, F.W.J.: Royal Society Mathematical Tables V. 9, Cambridge University Press. Cambridge England /1960/

A BOSON TÉROPERÁTOROK UN. DIFFERENCIÁL-OPERÁTOR REPREZENTÁCIÓJA ÉS ENNEK A NORMÁLRENDEZÉssel VALÓ KAPCSOLATA

Irta: Salamon Tamás

Összefoglalás

A koherens állapotok segítségével a boson téroperátorok egy érdekes megjelenítését, az un. differenciál operátor reprezentációt tekintjük át. Megmutatjuk, hogy ez milyen kapcsolatban van az operátor függvények normálrendezett alakban való előállításával és egy teljesen általános, újabb normálrendezési formulát vezetünk le. Illusztrálásképpen két konkrét operátorfüggvény normál alakját határozzuk meg.

Bevezetés

A koherens állapotok egyre nagyobb szerepet játszanak a kvantum rendszerek és az elektromágneses kölcsönhatások modern tárgyalásaiban. Bár a hozzájuk rendelhető fizikai kép jelenleg még nem eléggé szemléletes és világos, matematikai vonatkozásokban számos érdekes eredmény született. Ilyen szempontból említésreméltó a boson operátor függvények rendezési problematikája [1, 2]. Jelen dolgozat is tulajdonképpen e kérdéssel kíván foglalkozni; a koherens állapotok egy kevésbé ismert tulajdonságának segítségével kiegészítjük a boson operátor függvények un. normálrendezési technikáját [1].

Differenciál-operátor reprezentáció

A koherens állapot egyik legnevezetesebb tulajdonsága, hogy az el-tüntető téroperátor a sajátfüggvénye. Vagyis

$$a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \quad (1\ a)$$

Ezen egyenlet adjungáltja nyilvánvalóan

$$\langle\alpha|a^+ = \alpha\langle\alpha| \quad (1\ b)$$

Mivel az $[a, a^+] = 1$ értelmében a téroperátorok nem felcserélhetők, ezért közös sajátfüggvényük nem létezhet. Tehát az $|\alpha\rangle$ koherens állapot nem lehet az a^+ keltő operátor sajátállapota. Ezen túlmenően azt is mondhatjuk, hogy az a^+ operátornak nem is létezik sajátfüggvénye (1 a) értelemben véve [3]. Mégis, formálisan a keltő operátorra is előállítható az (1 a)-hoz hasonló egyen-

let, Ehhez induljunk ki a koherens állapot eredeti definíciójából [4] .

$$|\alpha\rangle \equiv e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle$$

$$a^+ |\alpha\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} a^+ |n\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n \sqrt{n+1}}{\sqrt{n!}} |n+1\rangle$$

$$= e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \frac{\partial}{\partial \alpha} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^{n+1}}{\sqrt{(n+1)!}} |n+1\rangle$$

Az egyenlethez $0 = \frac{\partial}{\partial \alpha} \frac{\alpha^0}{\sqrt{0!}}$ -t adva, kapjuk

$$a^+ |\alpha\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \frac{\partial}{\partial \alpha} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle$$

Figyelembe véve $|\alpha\rangle$ definícióját, írhatjuk

$$\frac{\partial}{\partial \alpha} |\alpha\rangle = -\frac{1}{2} \alpha^* |\alpha\rangle + e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \frac{\partial}{\partial \alpha} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle$$

és e két utolsó összefüggésből adódik

$$a^+ |\alpha\rangle = \left(\frac{1}{2} \alpha^* + \frac{\partial}{\partial \alpha} \right) |\alpha\rangle \quad (2 \text{ a})$$

Ezen egyenlet adjungáltja pedig

$$\langle \alpha | a = \left(\frac{1}{2} \alpha + \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right) \langle \alpha | \quad (2 \text{ b})$$

Még egyszer megemlítjük, hogy a 2-es egyenlet nem sajátérték egyenlet, hiszen a jobb oldalakon a differenciálási utasítás miatt operátorként ható differenciál-hányadosok is állnak!

A (2)-es egyenlet jelentése és értelme rögtön világossá válik, ha pl. a (2 b)-t jobbról egy tetszőleges állapotvektorral - jelöljük $|\psi\rangle$ -vel - beszorozzuk.

$$\langle \alpha | a | \psi \rangle = \left(\frac{1}{2} \alpha + \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right) \langle \alpha | \psi \rangle \quad (3 a)$$

Láthatjuk, hogy a $\langle \alpha | \psi \rangle = \psi_\alpha$ függvénytérben az eltüntető téroperátort, a-t az $\left(\frac{1}{2} \alpha + \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right)$ differenciál-operátorral reprezentálhatjuk.

A (1 b) egyenlettel hasonlóan eljárva

$$\langle \alpha | a^+ | \psi \rangle = \alpha^* \langle \alpha | \psi \rangle \quad (3 b)$$

mondhatjuk, hogy ψ_α függvénytérben a keltő téroperátort a^+ -t pedig az α^* komplex számmal való szorzással reprezentálhatjuk. Összefoglalásképpen az a és a^+ operátorok fenti megjelenítését nevezzük differenciál-operátor reprezentációnak. /Ez a kép analóg pl. az impulzus operátor $p = -i\hbar \frac{d}{dx}$ alakban való előállításához az un. Schrödinger reprezentációban./

Természetesen a felcserélési relációnak reprezentációtól függetlennek kell lennie, ami valóban így is van, ui.

$$\begin{aligned} \langle \alpha | [a, a^+] | \psi \rangle &= \langle \alpha | \psi \rangle \\ &= \left[\frac{\alpha}{2} + \frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^* \right] \langle \alpha | \psi \rangle \\ &= \left(\frac{\alpha \alpha^*}{2} + 1 + \alpha^* \frac{\partial}{\partial \alpha^*} - \frac{\alpha^* \alpha}{2} - \alpha^* \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right) \langle \alpha | \psi \rangle \\ &= \langle \alpha | \psi \rangle \end{aligned}$$

Általánosságban, egy tetszőleges $F(a, a^+)$ operátorra, vagy operátor függvényre (3) alapján írhatjuk:

$$\langle \alpha | F(a, a^+) | \psi \rangle = F\left(\frac{\alpha}{2} + \frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^*\right) \langle \alpha | \psi \rangle \quad (4)$$

Továbbá, ha feltesszük, hogy a $|\psi\rangle$ állapot olyan alakú, miszerint

$$\langle \alpha | \psi \rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} f(\alpha^*) \quad (5)$$

akkor a (4) kifejezést egyszerűsithetjük

$$\begin{aligned}
 \langle \alpha | F(a, a^+) | \psi \rangle &= F\left(\frac{\alpha}{2} + \frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^*\right) e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} f(\alpha^*) \\
 &= e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} F\left(\frac{\alpha}{2} - \frac{\alpha}{2} + \frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^*\right) f(\alpha^*) \\
 &= e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} F\left(\frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^*\right) f(\alpha^*) \quad (6)
 \end{aligned}$$

ahol a differenciálási utasítás egyrészt az F függvény α^* -t tartalmazó megfelelő részeire, másrészt az $f(\alpha^*)$ -ra vonatkozik.

A (6) -os egyenlet most már könnyen kapcsolatba hozható a bevezetőben említett un. normálrendezés kérdésével. Ismeretes, hogy az $F(a, a^+)$ operátor normálrendezett függvényalakját a koherens állapottal történő diagonális mátrixelemek adják meg [1]. Vagyis

$$F(a, a^+) = F_N(a, a^+) = \mathcal{H} \langle \alpha | F(a, a^+) | \alpha \rangle$$

ahol F_N az F függvény normálrendezett alakját, az \mathcal{H} a normálrendező operátort jelöli.

Válasszuk a tetszőleges $|\psi\rangle$ -nek egy nem α -val jellemzett koherens állapotot, pl. $|\beta\rangle$ -t. Akkor függvényterünk az (5) egyenlettel jellemzett speciális alakot ölti fel

$$\langle \alpha | \beta \rangle = \exp \left\{ -\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\beta|^2}{2} + \alpha^* \beta \right\}$$

és (6)

$$\langle \alpha | F(a, a^+) | \beta \rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\beta|^2}{2}} F\left(\frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^*\right) e^{\alpha^* \beta}$$

Képezve a $\beta \rightarrow \alpha$ határértéket, megkapjuk a kívánt normálalakot:

$$\begin{aligned}
 F_N(\alpha, \alpha^*) &= \lim_{\beta \rightarrow \alpha} \langle \alpha | F(a, a^+) | \beta \rangle \\
 &= \lim_{\beta \rightarrow \alpha} e^{-\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\beta|^2}{2}} F\left(\frac{\partial}{\partial \alpha^*}, \alpha^*\right) e^{\alpha^* \beta} \quad (7)
 \end{aligned}$$

és haddatva erre a kifejezésre az \mathcal{H} normálrendező operátort, az $F_N(a, a^+)$ operátorhoz, vagy operátor függvényhez jutunk.

Ha összehasonlítjuk [1] (7) és jelen munka (7) képleteit, láthatjuk, hogy az előző módszer szerint egy integrál, vagy végtelen összegezés segítségével állítjuk elő a normálalakot, míg itt egy egyváltozós, de általában végtelen rendű differenciálási utasítás elvégzése révén. Nyilvánvaló, hogy az $F(a, a^+)$ konkrét alakjától függ, melyik módszert célszerű alkalmazni, bár meg kell jegyeznünk, hogy ez utóbbi eljárás általánosabb, mivel - mint ezt majd látni fogjuk a 2. példánál - nem mindig található olyan teljes függvényrendszer, amelyben az $F(a, a^+)$ mátrixelemeit expliciten ki lehet fejezni.

Befejezésképpen és egyben a módszer illusztrálására két konkrét operátor függvény normálalakját határozzuk meg.

Példák

1. Legyen $F(a, a^+) = e^{-\lambda a^+ a}$ ahol λ tetszőleges paraméter. Akkor (7) alapján

$$\begin{aligned} F_N(\alpha, \alpha^*) &= \lim_{\beta \rightarrow \alpha} e^{-\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\beta|^2}{2}} \exp \left\{ -\lambda \left(\alpha^* \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right) \right\} e^{\alpha^* \beta} \\ &= e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \lim_{\beta \rightarrow \alpha} e^{-\frac{|\beta|^2}{2}} e^{\alpha^* \beta} e^{-\lambda} \\ &= \exp \left\{ (e^{-\lambda} - 1) \alpha^* \alpha \right\}, \end{aligned}$$

ahol felhasználtuk (F.1)-t. Tehát a normálalak:

$$e^{-\lambda a^+ a} = F_N(a, a^+) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(e^{-\lambda} - 1)^k}{k!} (a^+)^k a^k \quad (8)$$

2. Legyen most $F(a, a^+) = (\lambda a^+ + a)^n$, ahol λ tetszőleges paraméter és n pozitív egész szám.

Meg kell jegyeznünk, hogy ezt a feladatot a korábbi közleményben [1] megadott technikával nem tudjuk megoldani, hiszen tetszőleges λ paraméter esetén nem létezik olyan ismertebb teljes függvényrendszer, amelyben a fenti alakú operátor mátrixelemeit expliciten ki tudnánk fejezni.

Állítsuk elő tehát a $(\lambda a^+ + a)^n$ operátor függvény normál alakját! A normálalakot a következő általános kifejezés adja meg:

$$F_N(\alpha, \alpha^*) = \lim_{\beta \rightarrow \alpha} \langle \alpha | (\lambda a^+ + a)^n | \beta \rangle$$

amit (7) szerint írhatunk

$$= \lim_{\beta \rightarrow \alpha} e^{-\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\beta|^2}{2}} \left(\lambda \alpha^* + \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right)^n e^{\alpha^* \beta}$$

Hozzuk egyszerűbb alakra a jobb oldalon álló kifejezést, felhasználva (F.2)-t:

$$\begin{aligned} \left(\lambda \alpha^* + \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right)^n e^{\alpha^* \beta} &= e^{-\lambda \frac{(\alpha^*)^2}{2}} \frac{\partial^n}{(\partial \alpha^*)^n} \left[e^{\lambda \frac{(\alpha^*)^2}{2}} e^{\alpha^* \beta} \right] \\ &= e^{-\frac{\lambda}{2} (\alpha^*)^2 - \frac{1}{2\lambda} \beta^2} \frac{\partial^n}{(\partial \alpha^*)^n} \left[e^{\left(\sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta \right)^2} \right] \end{aligned}$$

ahol teljes négyzetre egészítettünk ki. Vezessünk be új változót, legyen

$$\begin{aligned} t &= \sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta \\ \frac{\partial}{\partial \alpha^*} &= \frac{\partial}{\partial t} \frac{\partial t}{\partial \alpha^*} = \frac{1}{i} \sqrt{\frac{\lambda}{2}} \frac{\partial}{\partial t} \end{aligned}$$

Igy

$$\begin{aligned} \frac{\partial^n}{(\partial \alpha^*)^n} \left[e^{\left(\sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta \right)^2} \right] &= \left(\frac{1}{i} \right)^n \left(\frac{\lambda}{2} \right)^{n/2} \frac{\partial^n}{\partial t^n} e^{-t^2} \\ &= (-i)^n \left(\frac{\lambda}{2} \right)^{n/2} e^{-t^2} \left[e^{t^2} \frac{\partial^n}{\partial t^n} e^{-t^2} (-1)^n \right] (-1)^n \end{aligned}$$

Figyelembevéve a Hermite-polinomok Rodrigues-féle előállítását [5], kapjuk

$$= (i)^n \left(\frac{\lambda}{2} \right)^{n/2} e^{-t^2} H_n(t)$$

majd visszahelyettesítjük az eredeti változót

$$\begin{aligned} \left(\lambda \alpha^* + \frac{\partial}{\partial \alpha^*} \right)^n e^{\alpha^* \beta} &= e^{-\frac{\lambda}{2} (\alpha^*)^2 - \frac{1}{2\lambda} \beta^2} i^n \left(\frac{\lambda}{2} \right)^{n/2} e^{\left(\sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta \right)^2} H_n \left[-i \left(\sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta \right) \right] \\ &= e^{\alpha^* \beta} i^n \left(\frac{\lambda}{2} \right)^{n/2} H_n \left[-i \left(\sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta \right) \right] \end{aligned}$$

hatványsorával helyettesítve a H_n -t [5],

$$\begin{aligned}
 &= e^{\alpha^* \beta} i^n \left(\frac{\lambda}{2}\right)^{n/2} \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \frac{n! (-1)^m}{m! (n-2m)!} \left[-2i \left(\sqrt{\frac{\lambda}{2}} \alpha^* + \sqrt{\frac{1}{2\lambda}} \beta\right)\right]^{n-2m} \\
 &= e^{\alpha^* \beta} i^n \left(\frac{\lambda}{2}\right)^{n/2} \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \frac{n! (-1)^m}{m! (n-2m)!} \left(-i \sqrt{\frac{2}{\lambda}}\right)^{n-2m} (\lambda \alpha^* + \beta)^{n-2m} \\
 &= e^{\alpha^* \beta} \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \frac{n! \left(\frac{\lambda}{2}\right)^m}{m! (n-2m)!} (\lambda \alpha^* + \beta)^{n-2m}
 \end{aligned}$$

Végeredményképpen a kívánt normálalak

$$\begin{aligned}
 F_N(\alpha, \alpha^*) &= \lim_{\beta \rightarrow \alpha} \exp \left\{ -\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\beta|^2}{2} + \alpha^* \beta \right\} \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \frac{n! \left(\frac{\lambda}{2}\right)^m}{m! (n-2m)!} (\lambda \alpha^* + \beta)^{n-2m} \\
 &= \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \sum_{k=0}^{n-2m} \frac{n! \left(\frac{\lambda}{2}\right)^m}{m! k! (n-2m-k)!} (\lambda \alpha^*)^k \alpha^{n-2m-k} \quad (9a)
 \end{aligned}$$

vagy a normálrendezett operátor függvény:

$$(a + \lambda a^+)^n = \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \sum_{k=0}^{n-2m} \frac{n! \left(\frac{\lambda}{2}\right)^m}{m! k! (n-2m-k)!} (\lambda a^+)^k a^{n-2m-k} \quad (9b)$$

(9 b) eredményünknek van egy érdekes speciális esete. Ha ugyanis $\lambda = -i\hbar$, akkor összevetve a téroperátorok és az impulzus és koordináta operátorok felcserélési relációit:

$$[q, p] = i\hbar[a, a^+] = [-i\hbar a^+, a]$$

látható, hogy a $-i\hbar a^+$, valamint az a operátorokból alkotott operátor függvény normálrendezett alakja formailag a q és p operátorokból alkotott ugyanazon függvény un. q -rendezett alakjával egyezik meg.

$$\text{Például } F(q, p) = (q+p)^n \text{ esetén}$$

$$(q+p)^n = \sum_{m=0}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \sum_{k=0}^{n-2m} \frac{n! \left(-\frac{1}{2}\right)^m}{m! k! (n-2m-k)!} q^k p^{n-2m-k} \quad (10)$$

alakhoz jutunk, amely egy új bizonyítása Cohen régebben levezetett eredményének [6] .

Függelék

1. Igazoljuk a következő azonosságot:

$$\exp \left\{ tx \frac{\partial}{\partial x} \right\} f(x) = f(x e^t) \quad (F.1)$$

ahol $f(x)$ tetszőleges függvényt és t tetszőleges paramétert jelöl.

Bizonyítás

Legyen $\log x = y$, akkor

$$\frac{\partial}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial (\log x)} \frac{\partial (\log x)}{\partial x} = \frac{1}{x} \frac{\partial}{\partial (\log x)}$$

így

$$x \frac{\partial}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial y}$$

tehát a baloldal írható

$$e^t \frac{\partial}{\partial y} f(e^y) = f(e^{y+t})$$

ugyanis

$$f(x+t) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{t^n}{n!} \frac{\partial^n}{\partial x^n} f(x) = e^t \frac{\partial}{\partial x} f(x)$$

Visszahelyettesítve, a kívánt azonossághoz jutunk.

2. Bebizonyítjuk a következő összefüggést:

$$\left(\frac{d}{dx} + \lambda x \right)^n f(x) = e^{-\frac{\lambda}{2} x^2} \frac{d^n}{dx^n} \left[e^{\frac{\lambda}{2} x^2} f(x) \right] \quad (F.2)$$

ahol $f(x)$ tetszőleges függvényt és λ tetszőleges, x -től nem függő paramétert jelent. Az igazolást teljes indukció módszerével végezzük.
 $n = 1$ esetére

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dx} + \lambda x\right) f(x) &= e^{-\frac{\lambda}{2}x^2} \left[\lambda x e^{\frac{\lambda}{2}x^2} f(x) + e^{\frac{\lambda}{2}x^2} \frac{d}{dx} f(x) \right] \\ &= \left(\frac{d}{dx} + \lambda x\right) f(x) \end{aligned}$$

állításunk tehát fennáll. Feltesszük, hogy $n = m$ esetére is igaz és megnézzük, hogy $n = m + 1$ esetén mi a helyzet. A baloldaltól kiindulva,

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dx} + \lambda x\right)^{m+1} f(x) &= \left(\frac{d}{dx} + \lambda x\right) e^{-\frac{\lambda}{2}x^2} \frac{d^m}{dx^m} \left[e^{\frac{\lambda}{2}x^2} f(x) \right] \\ &= e^{-\frac{\lambda}{2}x^2} \frac{d^{m+1}}{(dx)^{m+1}} \left[e^{\frac{\lambda}{2}x^2} f(x) \right] + \lambda x e^{-\frac{\lambda}{2}x^2} \frac{d^m}{dx^m} \left[e^{\frac{\lambda}{2}x^2} f(x) \right] \\ &\quad - \lambda x e^{-\frac{\lambda}{2}x^2} \frac{d^m}{dx^m} \left[e^{\frac{\lambda}{2}x^2} f(x) \right] \\ &= e^{-\frac{\lambda}{2}x^2} \frac{d^{m+1}}{(dx)^{m+1}} \left[e^{\frac{\lambda}{2}x^2} f(x) \right] \end{aligned}$$

látjuk, hogy a kívánt alakhoz jutottunk, így állításunkat igazoltuk.

I r o d a l o m

- [1] Salamon Tamás: KFKI Közl., 17, 145 /1969/
- [2] Salamon Tamás: KFKI Közl., 17, 199 /1969/
- [3] Klauder, J.R. and Sudarshan, E.C.G.: "Fundamentals of Quantum Optics" 7. fejezet, /W.A. Benjamin, INC; New York, 1968/
- [4] Glauber, R.J.: Phys. Rev. 131, 2766 /1963/
- [5] Abramowitz, M., Stegun, I.A.: "Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs and Mathematical Tables" 22. fejezet, /National Bureau of Standards Applied Mathematics Series, 55, 1966/
- [6] Cohen, L.: Journ. of Math. Phys. 7, 244 /1966/

Érkezett: 1970. márc.23.
 KFKI Közl., 18.évf. 3. szám, 1970.

DIMETIL-ANILINBEN OLDOTT FeCl_3 MÖSSBAUER-SPEKTRUMÁNAK VIZSGÁLATA GAMMA BESUGÁRZÁS UTÁN

Írta: Kósa Somogyi István, Dézsi István és Balog János

Összefoglalás

A 77°K -on 50 Mrad ^{60}Co gamma-dózist elnyelt DMA- FeCl_3 rendszernek a besugárzás hőmérsékletén mért Mössbauer-spektruma csak Fe^{3+} ionok jelenlétére utal, következésképpen az excitonos redukció hozama, ha ez a folyamat egyáltalán végbemegy, $G < 0,01$ ion/100 eV. A Mössbauer-spektrumok és az elektromos vezetőképesség-hőmérséklet görbék alapján valószínű, hogy a $77\text{--}150^\circ\text{K}$ hőmérséklettartományban lejátszódó szilárd fázisu reakciók nagyobb részét sekély csapdákból kiszabaduló elektronok és ionok okozzák.

A FeCl_3 gyökcsapdát tartalmazó dimetil-anilinben /DMA/ ^{60}Co gamma-sugárzásának hatására a $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$ redukció megy végbe. A fenti átalakulás szokatlanul magas kezdeti hozamának értelmezésére feltételeztük [1], hogy a redukció szilárd állapotban játszódik le a besugárzás során keletkező excitonok hatására. Ezeket a következtetéseinket spektrofotometriás méréseinkre alapoztuk, amelyek során a 77°K hőmérsékleten besugárzott DMA- FeCl_3 rendszerben bekövetkezett átalakulásokat nem szilárd állapotban, hanem a minta felolvasztása után szobahőmérsékleten határoztuk meg. E mérések megadták az átalakult Fe^{3+} mennyiségét, de semmi felvilágosítást nem nyújtottak arról, hogy a $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$ folyamat a besugárzás hőfoka és az anyag o.p.-ja közötti széles hőmérséklettartományban / $77\text{--}278^\circ\text{K}$ / mely hőmérsékleten játszódik le.

A lehetséges szilárd fázisban lejátszódó reakció mechanizmusának /exciton, elektron vagy negatív ion-migráció/ meghatározására termolumineszcenciás méréseket végeztünk [2, 3], amelyek szerint a redukció két lépcsőben játszódik le és a minta lassu vagy lépcsőzetes felmelegítése esetén 150°K -ig befejeződik. A felmelegítés során jól elkülönülő két lumineszcencia csucs az elektromos és ionos redukciót valószínűsítette, de az excitonok hatására bekövetkező redukciót ezzel a módszerrel nem lehetett a többi folyamattól elkülöníteni. Az excitonos redukció kimutatására alkalmasnak látszott a Mössbauer-effektus mérés módszere. Kezdeti tájékozódó méréseink [3] szerint a DMA- FeCl_3 rendszerben 77°K -on besugárzás nélkül is voltak Fe^{2+} ionok. Mint a későbbi vizsgálatok kiderítették, ezeknél a méréseknél a Fe^{2+} ionok a réz-mintatartó redukáló hatására keletkezhetnek, ill. a FeCl_3 előállításánál maradhat-

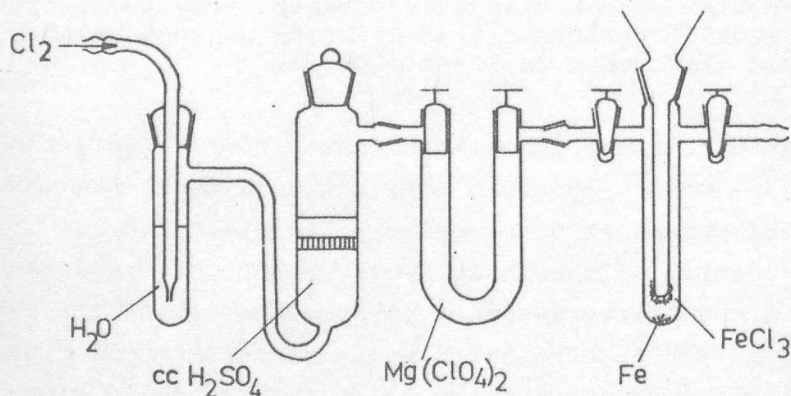
tak vissza, így a méréseket, az említett hibákat kiküszöbölve, megismételtük.

Jelen munkában a 77°K -on ^{60}Co gamma-sugárzással besugárzott FeCl_3 gyökcsapdát tartalmazó DMA Mössbauer-spektrumait és a DMA állandó feszültségénél felvett áram-hőmérséklet görbéit közöljük, amelyekből a redukciós folyamat mechanizmusára kívánunk következtetni.

Kísérleti rész

A használt anyagok

A Fluka pract. tisztaságu dimetil-anilint ecetsav-anhidriddel 2-3 óráig visszafolyatással forraltuk, majd redukált nyomáson üvegspirál-darabkákkal töltött 1 m hosszú kolonnán desztilláltuk. A fő frakciót még kétszer 10^{-5} torr nyomáson desztilláltuk. A végső terméket légtelenített törőzárás ampullákban sötétben tároltuk.



1. ábra

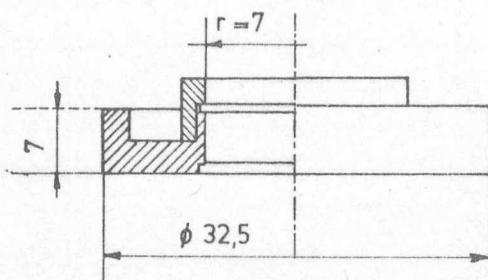
A FeCl_3 előállítására használt berendezés vázlata

A vas/III-klorid anhidridet $[\text{FeCl}_3]$ meghatározott súlyu 10 % ^{57}Fe izotópot tartalmazó vaspor klórgázban történő hevítésével állítottuk elő, előzetesen enyhe lánggal kiszáritott és klórral átöblített üvegrendszerben /1. ábra/. A palackból nyert klórt vizen, koncentrált kénsavon és magnézium-perkloráton átengedve tisztítottuk és száritottuk. A keletkezett $^{57}\text{FeCl}_3$ -ot a megfelelő csapocskák elzá-

rása után /1.1. ábra/ kesztyűs kamrába vittük, amelyben száraz N_2 atmoszférában készítettük el, majd pedig a mintatartóba töltöttük az adott FeCl_3 koncentrációju DMA oldatot.

A berendezések és mérőműszerek

A teflonból készült mintatartó rajza a 2. ábrán látható. A mintakészítéskor a teflontartót egy cseppfolyós nitrogénbe helyezett sárgaréz-tömb megfelelő bemélyedésébe helyezve lehűtöttük, s így a beöntött DMA azonnal megfagyott. A minta ettől kezdve a mérések befejezéséig cseppfolyós nitrogén alatt volt.



2. ábra

A Mössbauer spektrum felvételéhez használt mintatartó rajza

megállapítására a mérőcellát 250 Ci aktivitású ^{60}Co forrásban cseppfolyós nitrogénben sugároztuk be.

A Mössbauer-effektus méréséhez a mintát az MTA Izotóp Intézete 120000 Ci aktivitású forrásában sugároztuk be a cseppfolyós nitrogén hőmérsékletén. A hosszú besugárzás során a nitrogénben feldusuló ózon miatt a Dewar-edényben a cseppfolyós nitrogént több alkalommal teljesen kicseréltük, természetesen ügyelve arra, hogy ilyenkor a minta hőmérséklete ne emelkedjék $77-80^\circ\text{K}$ fölé.

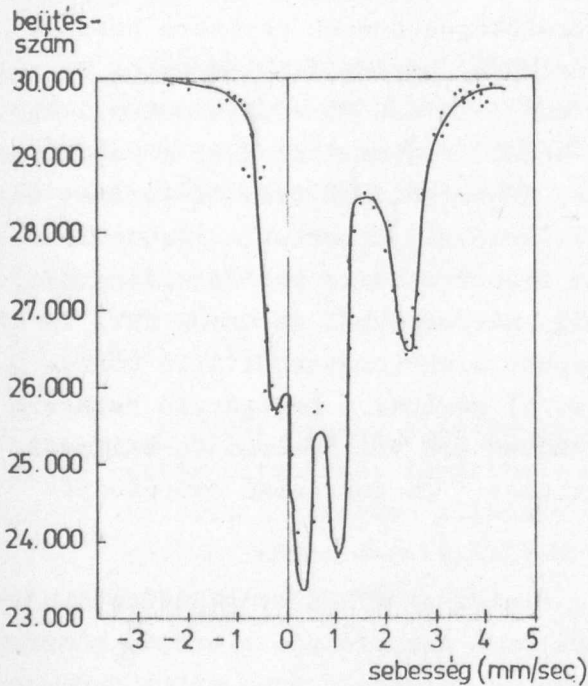
A Mössbauer-effektus mérésére "amplitudo mode"-ban működő NTA-512 analizátorral összekapcsolt spektrométert használtunk.

Az eredmények tárgyalása

A Mössbauer-effektus mérőberendezés érzékenységének megfelelően a DMA-FeCl_3 oldatnak besugárzás után $50-100 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ kétértékű vasiont kellett tartalmaznia. Korábbi munkáinkból [6] ismeretes volt, hogy a Fe^{3+} sugárkémiailag redukciójának hozama szilárd DMA-ban csak a besugárzás kezdetén mintegy 10^{18} eV/ml dózis elnyeléséig nagy; $G/-\text{FeCl}_3/ = 15$ molekula/100 eV, de később $\sim 10^{19}$ eV/ml dózis után a hozam $G/-\text{FeCl}_3/ \approx 0,1$ molekula/100 eV értékre csökken. Fentiek figyelembevételével a Mössbauer-effektus méréshez használt mintát $D = 50 \text{ Mrad} = 3,12 \times 10^{21} \text{ eV/g}$ dózissal sugároztuk be, amelynek hatására $\sim 3,0 \times 10^{18} \text{ Fe}^{2+}$ ion jött létre az anyag minden köbcentiméterében, ami durván 5 millimolos oldatnak felel meg.

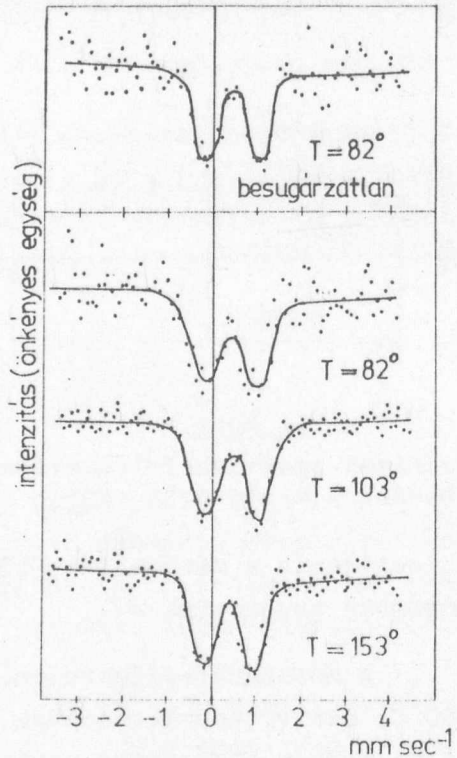
A 3. ábrán a Fe^{2+} és Fe^{3+} ionokat tartalmazó lefagyasztott DMA, a 4. ábrán pedig a cseppfolyós nitrogén hőmérsékletén besugárzott és 50 Mrad gamma-dózist elnyelt DMA-FeCl_3 rendszer különböző hőmérsékleteken felvett Mössbauer-spektrumai láthatók. A besugárzott anyag spektruma kizárólag a Fe^{3+} ionok jelenlétét mutatja, következésképpen a gamma-besugárzás folyamán excitonok egyáltalán nem vagy csak a Mössbauer-módszerrel kimutatható határ-

A DMA egyenáramú elektromos vezetőképességének mérésére használt mérőedény boroszilikát-üvegből készült 1 cm^2 felületű Pt-elektrodokkal. Az ismételt fagyasztással és kimelegítéssel légtelenített dimetil-anilint desztillációval juttattuk a mérőcellába. Az áramot a sorba kötött száraztelepből, mérőedényből és ORION KETI TR-15 típusú elektrométerből álló körben [4, 5] mértük. A besugárzás hatására bekövetkező vezetőképesség-változás



3. ábra

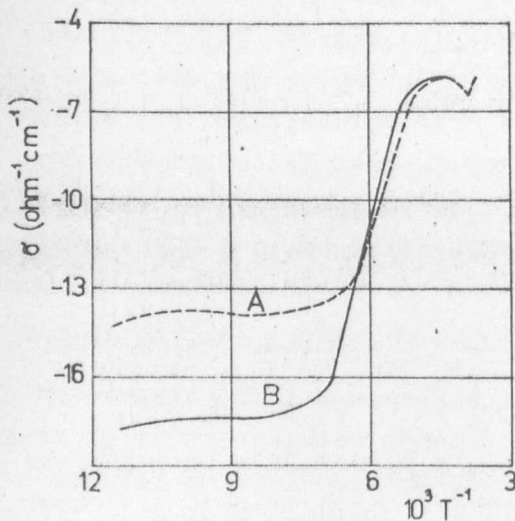
Fe^{2+} és Fe^{3+} ionokat tartalmazó befagyasztott dimetil-anilin oldat Mössbauer spektruma 77°K hőmérsékleten



4. ábra

A vas/III/-kloridot tartalmazó befagyasztott dimetil-anilin oldat Mössbauer spektruma különböző hőmérsékleteken 50 Mrad/g ^{60}Co gamma-dózis elnyelése után

koncentrációnál kisebb mennyiségben redukálják a Fe^{3+} ionokat. /Ez a határérték esetünkben 0,5 millimolos koncentrációt jelent, vagyis az excitonos redukció hozama, ha a folyamat egyáltalán lejátszódik $\text{G}/\text{-FeCl}_3/ < 0,01./$



5. ábra

A besugárzott /A/ és besugárzatlan /B/ dimetil-anilin egyenáramu elektromos vezetőképességének változása a hőmérséklet függvényében

Az excitonos energiaátadás kizárása után a redukciót elektron és ionvándorlással magyarázhatjuk. Ezeket a folyamatokat a lumineszcencia-mérés kétségtelenül kimutatta. Az elektromos töltések mozgása áramméréssel is jól észlelhető. A DMA vezetőképessége a 200-145°K hőmérséklettartományban kb. 10 nagyságrenddel csökken /5. ábra/. 145°K alatt a DMA a jó szigetelőanyagokra jellemző elektromos tulajdonságokkal rendelkezik. A 77°K-on besugárzott minta vezetőképessége felmelegítés közben egészen 145°K-ig mintegy két nagyságrenddel nagyobb a besugárzatlan minta vezetőképességénél. A töltéshordozók aktiválási ener-

glája ebben a hőmérséklettartományban 0,01-0,03 eV körüli érték. A besugárzott minta vezetőképességi görbéje 145^oK felett azonos a besugárzatlan mintáéval, így a termolumineszcenciás mérésekkel [2, 3] egybehangzóan e mérésekből is az következik, hogy a töltött részecskék által előidézett szilárd fázisu reakció 77 és 150^oK között játszódik le.

Köszönetnyilvánítás

A szerzők köszönetet mondanak az Izotóp Intézet sugárkémikusainak a besugárzások során nyújtott segítségükért.

I r o d a l o m

- [1] Dainton, F.S., Kosa Somogyi, I., Salmon, G.A.: Trans. Faraday Soc. 61, 871 /1965/
- [2] Kósa Somogyi I., Vizessy M.: KFKI Közl., 12, 287 /1964/
- [3] Kósa Somogyi I., Tompa K., Dézsi I.: KFKI Közl., 14, 369 /1966/
- [4] Kosa Somogyi, I., Balog, J.: Ionic processes in gamma-irradiated 3-MP glass, Advances in Chemistry Series No.82 "Radiation Chemistry-II." Am.Chem. Soc.Publ. Washington, 1968, p. 291
- [5] Kosa Somogyi, I.: Ionic processes in gamma-irradiated organic glasses, Proc. 9th Japan Conf. on Radioisotopes, Tokyo, 1969, p. 588
- [6] Kosa Somogyi, I.: Radiation Chemistry of Aromatic Compounds in the Solid and Liquid States Report to the IAEA, 1963

Érkezett: 1970. ápr. 10.

KFKI Közl., 18.évf. 3.szám, 1970.

SZUBMIKROKONCENTRÁCIÓJU JODÁT-OLDATOK RADIOLITIKUS REDUKCIÓJA SAVANYU ÉS LUGOS KÖZEGBEN

Irta: Nagy G. Ágnes

Összefoglalás

Szubmikrokoncentrációju jodát-oldatokat /hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ sugározunk be Co-60 γ -forrásban, levegő jelenlétében. Mértük a képződött redukciós termék, a jodid százalékos mennyiségét a besugárzási idő, az oldat sav és lug tartalma, valamint a savmaradék minőségének függvényében. A jodát-oldatok koncentrációja $\sim 10^{-12}$ g.ml $^{-1}$ volt, a ^{131}I aktivitása alapján számolva. Az oldatokat sósavval, kénsavval savanyítottuk, illetve nátronluggal lugositottuk. Összehasonlítottuk a szubmikro- és makro-koncentrációju jodát - illetve jodid-oldatok radiolitikus tulajdonságait és foglalkoztunk az eltérések lehetséges okaival.

Korábbi közleményeinkben a hordozómentes ^{131}I -készítmények kémiai tulajdonságaival foglalkoztunk [1, 2, 3]. Vizsgálataink szerint ezen I^- és IO_3^- - oldatokban tárolás közben a jód saját sugárzásának következtében, egyensúlyra vezető oxidációs-redukciós folyamatok játszódnak le. Ez a jodid-jodát egyensúly a jodid-oldatok külső γ -forrással való besugárzásával is elérhető és mindkét esetben a vizsgált paraméterektől - pH, γ -dózis - azonos tendenciájú függést mutatott.

A hordozómentes jód-készítmények saját sugárzása okozta változásainak vizsgálata hosszú időt vesz igénybe - több napot, illetve hetet - és viszonylag nagy fajlagos aktivitású preparátumokat igényel. Érdekesnek látszott ezért ezen készítményeket sugárkémiai vizsgálatoknak alávetni /külső γ -besugárzással/, mivel itt rövid besugárzási idő alatt térfogategységre számítva kis aktivitású oldatokkal dolgozva viszonylag gyorsan nyerhetjük az eredményeket. Természetesen az összehasonlításnál és a következtetések levonásánál nagyon gondosan kell eljárni.

A jód sugárkémiai irodalmában ilyen nagy hígítású oldatokkal kapcsolatban nem találtunk közleményeket. E tárgykörben publikált munkáknál a vizsgált oldatok - jodid, jód vagy jodát - koncentrációjának alsó határa általában 10^{-4} - 10^{-5} M.l $^{-1}$ vagyis jódra számolva $\sim 10^{-6}$ g.ml $^{-1}$ [4, 5, 6].

A víz sugárkémiai termékeinek koncentrációja kísérleti körülményeink között hasonló nagyságrendű. Közelítőlegesen: abban az esetben ha a sugárforrás dózisteljesítménye 10^{18} eV. ml⁻¹ . perc⁻¹ és a $G/H_2O_2/\simeq 1$, akkor a képződő hidrogénperoxid mennyisége milliliterenként 10^{16} db, vagyis 10^{-6} g . ml⁻¹ . sec⁻¹. Az általunk vizsgált hordozómentes jodid, illetve jodát-oldatok koncentrációja aktivitásuk alapján számolva 10^{-12} g . ml⁻¹ nagyságrendű /10. Ci ml⁻¹/. Ezeknek az oldatoknak sugárkémiai vizsgálatánál tehát egy olyan speciális eset áll fenn, hogy a víz sugárkémiai termékeinek kialakulását, illetve egyensúlyát, a vízben oldott anyag nem zavarja, a termékeket gyakorlatilag nem fogyasztja. Ebből a helyzetből adódik továbbá az is, hogy vizsgálati eredményeinket természetszerűen nem a sugárkémiaiban szokásos G értékek formájában adtuk meg, hanem az aktiv jód kémiai formáinak - különböző vegyértékállapotú atomjainak - százalékos arányát tüntettük fel az ábrákon.

A fent említett $I^- - IO_3^-$ egyensúlyt megpróbáltuk elérni olyan oldatok besugárzásával, amelyek a radioaktív jódot jodát formában tartalmazzák. Az alábbiakban ezekről a vizsgálatokról számolunk be.

Kísérleti rész

Oldat készítés: a hordozómentes $^{131}IO_3^-$ -ot Pt-lemezen adszorbeáltatott I^- anódos oxidációjával nyertük [7]. Az így kapott oldatot /kétszer desztillált vízzel anódosan deszorbeáltatott IO_3^- / a kísérletnek megfelelő koncentrációjú $H_2SO_4^-$, NaOH-oldattal, illetve kétszer desztillált vízzel hígítottuk. Az oldatok fajlagos aktivitása 10-15 μ Ci . ml⁻¹ volt.

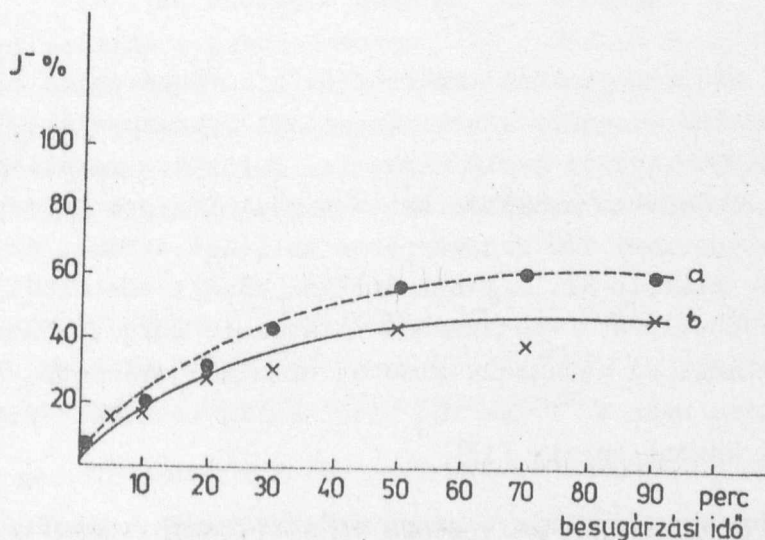
Besugárzás: az oldatokat csiszolt-dugós üvegampullákban sugároztuk be 2000 Ci Co-60 γ -forrásban, levegő jelenlétében. A besugárzás hőmérséklete $30^\circ C \pm 2^\circ C$. A dózis teljesítmény 10^{18} eV. ml⁻¹ . perc⁻¹ volt. A besugárzási időt 5-től 90 percig változtattuk. Besugárzás után 10-15 perccel az oldatokat papirelektroforizáltuk.

Analízis: a képződött termékek szeparálására nagyfeszültségű papirelektroforézises módszert alkalmaztunk. O.E.-20 típusú készüléket használtunk. 1,5 cm széles 42 cm hosszú Whatman-1 papircsikókat 10^{-2} M NaCl oldattal nedvesítettük, majd a középponttól katódirányba 5 cm-re cseppentettük a vizsgálandó oldatot. A papircsikókat 3 cm széles üveglapok közé helyeztük, amelyekre ezután ólom-nehezéket tettünk / 19 g . cm⁻²/. A papircsikókat alulról hűtöttük áramló csapvízzel. Elektrolitként 10^{-2} M NaCl oldatot használtunk. A feszültséggradiens 30 V.cm⁻¹ volt. Az ionfajták szeparálása 20 perc alatt ment végbe [8].

Szeparálás után a papircsikok aktivitását GM csöves félautomatikus berendezéssel mértük. A berendezés tartozéka egy lineáris rateméter, amelynek jeleit egy EPP-O9 M2 regisztráló potenciométer rögzítette. Ez a berendezés mérte a csikok aktivitását, illetve a papirelektroforegrammot elkészítette. Az így kapott mérési adatok közepes négyzetes hibája $\sigma \leq \pm 3$.

Az eredmények ismertetése és értékelése

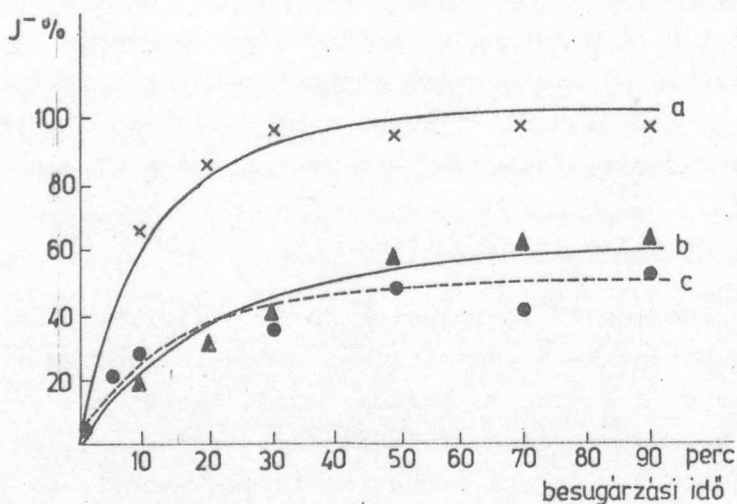
A hordozómentes $^{131}\text{IO}_3^-$ -oldatok Co-60 γ -forrás sugárzásának hatására jodiddá redukálódtak. A radiolizises redukció mind savanyu, mind lugos közegben végbe ment. A redukciós termék jodid, esetenként - savanyu oldatokban - elemi jód képződését is észleltük, de a jodidhoz viszonyítva elhanyagolható mennyiségben $< 5\%$. A redukciós termék mennyisége a besugárzási idő függvényében 40-60 %-kal telítési értéket ért el /1a, b, 2b, c görbék/. A radiolizises redukció 10^{-3} M HCl, 10^{-3} n. H_2SO_4 , 10^{-3} M NaOH-os közegekben IO_3^-/I^- egyensúlyhoz vezetett. Az egyensúlyi értékek ezekben az oldatokban hasonló nagyságúak voltak. A radiolizises redukció sebessége 10^{-2} M NaOH-os jodát-oldatban megnőtt és a redukció a jodát teljes mennyiségének átalakulásához vezetett /2a. ábra/.



1. ábra

Hordozómentes $^{131}\text{IO}_3^-$ -oldat redukciója
 γ -sugárzás hatására.

I^- képződés 10^{-3} n H_2SO_4 oldatban /a/
 I^- képződés 10^{-3} M HCl oldatban /b/



2. ábra

Hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ -oldat redukciója

γ -sugárzás hatására.

I^- képződés 10^{-2} M NaOH oldatban /a/

I^- képződés 10^{-3} n H_2SO_4 oldatban /b/

I^- képződés 10^{-3} M NaOH oldatban /c/.

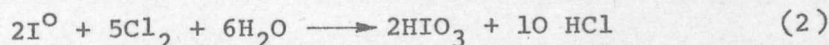
Előbbi közleményünkben ismertettük a hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ -oldatok γ -forrásban történő besugárzásának vizsgálati eredményeit [2]. E szubmikrokoncentrációjú savanyu jodid oldatok - amint azt megállapítottuk - sugárzás hatására jodáttá oxidálódtak és a radiolizises oxidációs termék mennyisége a besugárzási idő függvényében telítési értéket ért el, I^-/IO_3^- egyensúly alakult ki. A fenti ábrákon közölt adatokból látható, hogy ez a I^-/IO_3^- egyensúly a γ -sugárzásnak alávetett hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ -oldatoknál is kialakul, az egyensúly mindkét oldalról elérhető. Azonos integráldózis elnyelése után a $\text{I}^- \rightleftharpoons \text{IO}_3^-$ átalakulás telítési értékei mindkét esetben 40-60 % között voltak [11].

A makrokoncentrációjú savanyu jodid-oldatok radiolizises vizsgálatainál - amint az ismeretes - elemi jód képződését észlelték és a jód sugárkémiai reakcióit is ezek alapján feltételezték és kezelték [4, 5, 6]. E szubmikrokoncentrációjú jodid és jodát oldatok radiolizises vizsgálati eredményei azt mutatják, hogy ezekben az oldatokban a vizradiolizises termékek nem I^-/I_2 , illetve IO_3^-/I_2 egyensúly kialakulását eredményezik, hanem I^-/IO_3^- egyensúlyhoz vezetnek. Ez azt jelenti, hogy az oxidáló sajátoságú vizradiolizises termékek jodáttá képesek a kiindulási jodid-oldatot oxidálni. A két, különböző koncentrációjú jodid- és jodát - oldatoknál tapasztalt eltérést a sugárkémiai reakciókra szuperponálódott kémiai reakció-

nak / $5 \text{ I}^- + \text{IO}_3^- + 6 \text{ H}^+ \rightarrow 3 \text{ I}_2 + 3 \text{ H}_2\text{O}$ / tulajdonítjuk. A szubmikrokoncentrációk tartományában ez a reakció elhanyagolhatóan kis sebességi állandóval bír és így a jodid és jodát ionfajták egymás mellett hosszú időn át léteznek.

A makrokoncentrációju lugos jodát-oldatok radiolizises átalakulásánál a jodidképződést is feltételezték, azonban a szerzők a redukált ekvivalensek átlagszámának mérésére törekedtek és így a termék minőségét nem jelező vizsgálati módszert választottak [9]. Az általunk használt papirelektroforézises módszer a képződött termék mennyisége mellett a minőségét is - kémiai reakció közbeiktatása nélkül - jelzi.

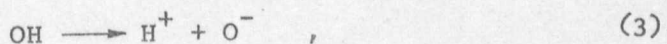
Az 1. ábrán bemutatott vizsgálati adatok olyan hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ oldatokkal végzett kísérletek eredményei, amelyeknek savanyítását / $\text{pH} \sim 3$ / kénsavval és sósavval végeztük, s így az oldatok különböző minőségű savmaradékot tartalmaztak. A kloridoldatok egyik sugárkémiai terméke - amint az ismeretes - elemi klór [10]. A sugárzás hatására képződött klór befolyásolhatja a jodát sugárkémiai reakcióit azáltal, hogy a képződött jodiddal reakcióba lép:



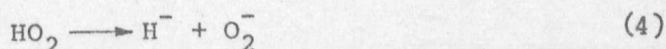
Vizsgálataink szerint a hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ -oldatok ezen oxidációja tömény klóros vízzel elvégezhető [11]. Az általunk savanyításra használt 10^{-3} M-os HCl oldat azonban úgy látszik nem szolgáltatott a besugárzáskor annyi elemi klórt, amely a jodát radiolizises redukcióját megakadályozná, illetve a viz radiolizises termékeinek elsődleges döntő szerepét háttérbe szorította volna.

A hordozómentes $^{131}\text{I}^-$ -oldat 10^{-2} M NaOH-os közegben mutatott radiolizises redukció sebességének megnövekedése, illetve a jodát teljes redukciója sugárkémiai szempontból magyarázható.

Ma már közismert az, hogy a viz-radiolizises termékek / H ; OH ; HO_2 ; e_{aq} ; H_2O_2 / közül pl. az erősen oxidáló tulajdonságu OH gyök pH 9 felett disszociál és O^- alakban reagál



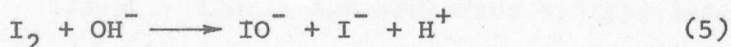
a H redukciós készsége a pH növekedésével nő,
a HO_2 lugos közegben O_2^- -t ad [12].



A jodát lugos közegben történő gyors és teljes mértékű redukciója arra utal,

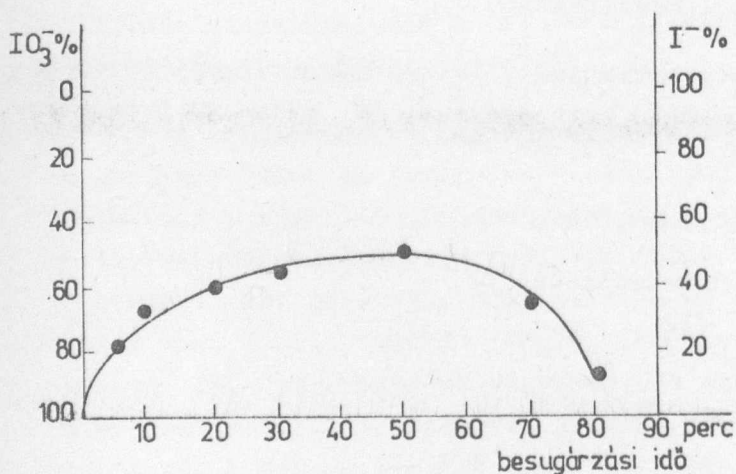
hogy a víz radiolizises oxidáló termékeinek disszociációja olyan egyedek képződéséhez vezet, amelyek jodid \rightarrow jodát oxidációra nem képesek. Ennek felel meg az, a már közölt megfigyelésünk is, hogy lugos közegben $[pH \sim 11]$ a hordozómentes $^{131}I^-$ se állás közben, se γ besugárzás hatására nem oxidálódik [11] .

Meg kell azonban jegyezni azt, hogy a szubmikrokoncentrációju elemi jód lugos közegben nem létképes. Ez a sajátossága megegyezik a makrokoncentrációju jód tulajdonságával. Közismertek a következő átalakulások:



Az 5. és 6. reakcióra azonban esetünkben nem hivatkozhatunk, hiszen ilyen koncentrációknál teljesen valószínűtlen a molekuláris jód kialakulása, s ugyancsak nem gondolhatunk a makromennyiségek kémiájának értelmében a hipojodid diszproporcionálódására sem. Szubmikrokoncentrációban teljesen más mechanizmust kell feltételeznünk és jelenleg csak arra a megfigyelésünkre hivatkozhatunk, hogy a hordozómentes $^{131}I^0$ savas közegben létképes, lugos pH-nál jodiddá alakul [13] . Mindezek előre bocsátása után ha lugos közegben a jodát sugárzás hatására csak elemi jódig redukálna, a fentiek alapján mi akkor is jodidot észlelnénk. Akkor azonban savanyu közegben is - minthogy az elemi jód savanyu oldatban létképes - IO_3^-/I^0 egyensúly jelentkezne. E kevésbé valószínű feltevést a következőkben kísérletileg tisztázni fogjuk.

A 3. ábrán 10^{-4} M NaOH-os közegű hordozómentes $^{131}IO_3^-$ radiolizises redukciójának eredményeit tüntettük fel. E szerint a vizsgálat szerint 10^{-4} M NaOH-os közegben a jodát redukcióját, majd a képződött jodid jodáttá történő oxidációját észleltük. Ezek az eredmények, szemben az előbbiekkal,



3. ábra

Hordozómentes $^{131}IO_3^-$ -oldat redukciója γ -sugárzás hatására. I^- képződés 10^{-4} M NaOH oldatban

rosszul reprodukálhatóak voltak, ami alatt azt értjük, hogy a jódát-mennyiség maximuma nem mindig ugyanazon besugárzási időnél, illetve integráldózisnál jelentkezett. Ennek ellenére érdemesnek véltük ezt a kísérletet is megemlíteni, mint egy utalást arra vonatkozóan, hogy $\text{pH} \sim 4-10$ intervallumban esetleg valamilyen másfajta sugárkémiai reakciók léphetnek előtérbe.

I r o d a l o m

- [1] Nagy G.Á.: Magy.Kém.F., 72, 275 /1966/
- [2] Nagy G.Á.: Acta Chim. Acad.Sci. Hung., 48, 331 /1966/
- [3] Nagy G.Á.: Magy.Kém.F., 74, 84 /1968/
- [4] Takeshi Sawai, Yoshiharu Shinozaki, Gisuke Meshitsuka: Bull.Chem.Soc. Japan, 39, 951 /1966/
- [5] Schwaz, H.A., Losee, J.P., Allen, A.O.: J.Am.Chem.Soc., 76, 4693 /1954/
- [6] Botár L.: Doktori disszertáció, Budapest 1966.
- [7] Tóth G., Nagy G.Á.: Int.J.Appl.Rad. Isotopes., 17, 359 /1966/
- [8] Nagy G.Á.: KFKI Közl., 14, 113 /1966/
- [9] Haissinsky, M., Jove, J., Szymanski, W.: J.Chim.Phys., 61, 574 /1964/
- [10] Sworski, T.J.: Rad. Res., 2, 26 /1955/
- [11] Nagy G.Á.: Kandidátusi disszertáció, Budapest 1966.
- [12] Verescsinszkij, I.V., Pikajev, A.K. : Bevezetés a sugárhatáskémiába Műsz.Könyvkiadó, Budapest 1967.
- [13] Nagy G.Á.: /Megjelenés alatt/
- [14] Degn, H.: Act. Chem. Scandinavica., 21, 1057 /1967/

Érkezett: 1970. június 5.

KFKI Közl., 18.évf. 3.szám, 1970.

